

(12)特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局

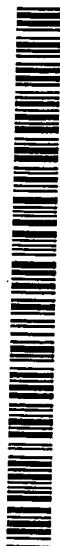


(43) 国際公開日  
2001 年 11 月 8 日 (08.11.2001)

PCT

(10) 国際公開番号  
WO 01/83620 A1

- (51) 国際特許分類: C08L 101/00, C08K 3/22, H05K 1/03, 3/46, H01L 23/29 (72) 発明者: 安藤太郎 (ANDO, Taro), 真鍋 等 (MANABE, Hitoshi), 清水晃治 (SHIMIZU, Koji); 〒762-0012 香川県坂出市林田町4285 協和化学工業株式会社 研究開発部内 Kagawa (JP).
- (21) 国際出願番号: PCT/JP01/03771 (74) 代理人: 弁理士 大島正孝 (OHSHIMA, Masataka); 〒160-0004 東京都新宿区四谷四丁目3番地 福屋ビル 大島特許事務所 Tokyo (JP).
- (22) 国際出願日: 2001 年 5 月 1 日 (01.05.2001) (81) 指定国 (国内): CN, ID, IN, KR, SG.
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ: 特願2000-133788 2000 年 5 月 2 日 (02.05.2000) JP 添付公開書類:  
特願2000-141962 2000 年 5 月 15 日 (15.05.2000) JP 一 国際調査報告書
- (71) 出願人: 協和化学工業株式会社 (KYOWA CHEMICAL INDUSTRY CO., LTD.) [JP/JP]; 〒761-0113 香川県高松市屋島西町305 Kagawa (JP). 2 文字コード及び他の略語については、定期発行される各 PCT ガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。



(54) Title: RESIN COMPOSITION FOR ELECTRIC AND ELECTRONIC APPLIANCES

(54) 発明の名称: 電機および電子機器用樹脂組成物

(57) Abstract: A resin composition for electric and electronic appliances which comprises (a) a thermoplastic resin and (b) magnesium hydroxide particles, characterized in that the magnesium hydroxide particles satisfy the requirements (i) to (iv): (i) 0.5 to 5  $\mu\text{m}$  in terms of an average secondary particle diameter, as measured by the laser diffraction scattering method, (ii) 0.1 to 10  $\text{m}^2/\text{g}$  in terms of a specific surface area, (iii) 0.02 wt % or less as metal in terms of the sum of the contents of Fe compounds and Mn compounds, and (iv) 10 ppb or less as metal in terms of the sum of the contents of U compounds and Mn compounds. The composition for electric and electronic appliances is excellent in flame retardance, water resistance, thermal conductivity and heat resistance.

[続葉有]

WO 01/83620 A1



---

(57) 要約:

(a) 熱硬化性樹脂および(b) 水酸化マグネシウム粒子よりなる熱硬化性樹脂組成物であって、該水酸化マグネシウム粒子は下記(i)～(iv)の要件を満足することを特徴とする電機および電子機器用熱可塑性樹脂組成物。

(i) レーザー回折散乱法で測定された平均2次粒子径が $0.5 \sim 5 \mu\text{m}$

(ii) BET法比表面積が $0.1 \sim 10 \text{m}^2/\text{g}$

(iii) Fe化合物およびMn化合物の含有量の合計量が金属として0.02重量%以下、かつ

(iv) U化合物およびTh化合物の含有量の合計量が金属に換算して10ppb以下

本発明によれば、難燃性、耐水性、熱伝導性および耐熱性に優れた電機および電子部品用の熱硬化性樹脂組成物が提供される。

## 明 細 書

## 電機および電子機器用樹脂組成物

## 5 発明の詳細な説明

## 発明の属する技術分野

本発明は特に難燃性、耐熱性および耐水性に優れた電機および電子機器のための熱硬化性樹脂組成物に関する。また、本発明はかかる樹脂組成物より硬化させた成形品、特に電機および電子機器用部品の封止、被覆、絶縁、積層板、金属張り積層板、例えば、封止成形品、プリプレグ、多層回路基板および回路基板用積層板等にも関する。

半導体素子や集積回路素子は、外部の振動、衝撃、塵埃、水分、雰囲気ガス、等から影響を受けないように、各種の封止材料による封止が行われている。封止材料としては、金属材料、セラミック、ガラスなどが使用されてきたが、コスト、

15 量産性の観点から最近ではほとんどが熱硬化性樹脂を用いた封止が行われている。

しかし、半導体分野の技術革新により集積度の向上、素子サイズの小型化、配線の微細化が進み、パッケージも小型で薄型になる傾向にあり、これに伴って封止材料に対し高い信頼性が必要となってきた。また封止材料としては、強度および熱伝導性が要求され、そのため樹脂中に無機充填剤が配合されたものが使用さ

20 れている。

一方、エポキシ樹脂などに代表される熱硬化性樹脂は、機械的強度、電機的特性、熱的特性、接着性、耐薬品性および耐水性が優れていることから、ガラス、布、紙、合成繊維などの基材と組み合わせた各種積層板、例えば構造用、重電機器用、プリント配線板、プリント配線板用金属張り積層板等にも応用されている。

25 これらの電機および電子部品は、技術革新により、小型化、薄型化および高性能化に伴い、電機および電子機器を構成する半導体装置、およびこれを実装する多層プリント配線基板にも小型化、薄型化、高性能化、高信頼性が必要になってきた。

このため多層プリント基板の実装方法はピン挿入型パッケージから、表面実装型パッケージへ、さらにチップを直接実装するベアチップ実装の方法へと移行しており、樹脂の高密着性が必要となっている。この高密着性は、樹脂の吸水率を減少させることでも達成できる。また回路基板用積層板としては、積層板製造時

5 や電子部品実装時に高温高湿の条件下で処理された後、半田浴浸等の工程があるため、積層板に膨れ、剥れ等がおこりやすく、そのため樹脂は高度の耐熱性、難燃性および長期の安定性が要求されている。

前記した半導体装置の封止、プリント配線基板およびその積層板など（以下これらを“電子部品”と称することがある）に使用される熱硬化性樹脂は、高度の

10 難燃性が要求され、そのため樹脂中に臭素含有エポキシ樹脂および酸化アンチモンを添加する方法が行われている。しかしながらこの場合、燃焼時に臭化水素、臭素系ガス、臭素化アンチモンなどの発生による人体への有害性や機器への腐食性と、電子部品の製造過程で産出する産業廃棄物やエポキシ樹脂成形材料およびその成形材料を用いた電子部品の処分の問題など環境上の安全性が問題となっ

15 ている。

さらに上記難燃剤を添加した樹脂を使用した電子部品を高温で長時間放置すると、遊離した臭素の影響で半導体素子上のアルミニウム配線が腐食し、電子部品の故障の原因となり高温信頼性の低下が問題となる。上記の問題点を解決するために、難燃剤として、金属水酸化物を添加する方法が提案されている。

20 しかしながら、この方法では金属水酸化物を大量（40重量%以上）配合しなければならないので、また電子部品が高温（通常215～260℃）に曝され吸水量が多い金属水酸化物は吸湿した水分の急激な気化により、半導体装置の膨れやクラックが発生するという問題が起こり、また耐半田性の低下という問題が生じている。また、80～200℃の温度および相対湿度70～100%の高温高

25 湿環境下での電子部品の機能が低下するという問題がある。

この問題を解決するために特開平9-176368号公報では、金属水酸化物を水酸化マグネシウムに限定し、さらにこの水酸化マグネシウムに表面処理を施し吸湿を防ぎ、さらに樹脂への分散性を改良した組成物が提案されている。

- しかしながら、近年の電子部品分野の技術革新により、より高い難燃性とより高い耐湿性および安全性が必要とされている。さらに水酸化マグネシウム粒子中の不純物、特にFe化合物、Mn化合物が多い場合は、樹脂の熱劣化の原因となり、また、最近のメモリー容量の増大、すなわちメモリーの高集積度化に伴う蓄積電荷量の減少化のため、ウラン（U）およびトリウム（Th）等、放射性物質の含有量が多い場合は、U、Th等の崩壊による $\alpha$ 線により、メモリーがソフトエラーを発生することが問題になってきている。例えば、U、Thの含有量として1M～4Mビットのメモリーで1ppb（ng/g）以下、4～16Mビットで0.1ppb（ng/g）以下がソフトエラーに対する信頼性を確保するために要求されている。そのため封止材として用いられる合成樹脂に配合する水酸化マグネシウムの放射性物質の含有量が微量であること、すなわち低 $\alpha$ 線であることが要求されるようになった。

また水酸化マグネシウム粒子中の水溶性アルカリ金属塩が耐水絶縁性に影響を与えることを発見した。

- かくして本発明者等の研究によれば、不純物としてのFe化合物、Mn化合物、U化合物およびTh化合物を一定量以下含む高純度の水酸化マグネシウム粒子であって、且つ平均2次粒子径の値を5 $\mu$ m以下とし、さらに、比表面積（BET）の値を10m<sup>2</sup>/g以下の水酸化マグネシウム粒子の一定量と、さらに必要により他の無機充填剤の一定量を合成樹脂に配合することによって、高温高温条件下においても十分な耐水性を有し、金型や電子部品に対して耐食性を有しかつ難燃性および熱伝導性に優れ、メモリーのソフトエラーの発生を抑えた電子部品用樹脂組成物およびその成形品が得られることが判明した。

- 本発明は前記知見に基づいて到達されたものである。すなわち本発明によれば、（a）熱硬化性樹脂および（b）水酸化マグネシウム粒子よりなる熱硬化性樹脂組成物であって、該水酸化マグネシウム粒子は下記（i）～（iv）の要件を満足することを特徴とする電気および電子機器用熱可塑性樹脂組成物が提供される。

（i）レーザー回折散乱法で測定された平均2次粒子径が0.5～5 $\mu$ m

（ii）BET法比表面積が0.1～10m<sup>2</sup>/g

(iii) Fe化合物およびMn化合物の含有量の合計量が金属として0.02重量%以下、かつ

(iv) U化合物およびTh化合物の含有量の合計量が金属に換算して10ppb以下

5 以下本発明についてさらに詳細に説明する。

水酸化マグネシウム粒子は熱伝導性のみならず水酸化マグネシウム中の鉄化合物およびマンガン化合物の含有量が多いほど、配合した樹脂の熱安定性を著しく低下させる原因となる。しかし、これら化合物の合計量が前記範囲を満足するのみで樹脂の物性低下が損なわれないというわけではなく、その上に前記平均2次

10 粒子径および比表面積がそれぞれ前記範囲を満足することが必要である。粒子の平均2次粒子径が大きくなるほど、樹脂との接触面が減り熱安定性は良くなるが、機械的強度が低下したり、外観不良という問題が生じてくる。故に水酸化マグネシウムの平均二次粒子径の範囲は、0.5~5 $\mu$ m、好ましくは0.7~3 $\mu$ mが有効である。

15 また、水酸化マグネシウム粒子のBET法による比表面積は0.1~10m<sup>2</sup>/g、好ましくは0.2~5m<sup>2</sup>/gである。さらにU化合物とTh化合物の含有量合計が金属に換算して10ppb以下、好ましくは5ppb以下、さらに好ましくは1ppb以下を満足する必要がある。また望ましくは水溶性アルカリ金属塩含有量が0.05重量%以下、好ましくは0.03重量%以下、さらに好ま

20 しくは0.003重量%以下である。

Fe化合物およびMn化合物含有量が上記範囲を越えて含有している場合、樹脂の熱劣化に影響を与える。さらにU化合物およびTh化合物の含有量が前記範囲内であれば、メモリーのソフトエラーの発生を軽減出来るが、含有量が多いほどソフトエラーが多くなる。

25 前記したように、水酸化マグネシウム粒子は平均2次粒子径、比表面積、鉄化合物およびマンガン化合物の合計含量、U化合物およびTh化合物の含有量、さらに望ましくは水溶性アルカリ金属塩の含有量が前記範囲であれば、樹脂との相溶性、分散性、成形および加工性、成形品の外観、機械的強度および難燃性、メ

モリーのソフトエラーの軽減等の諸特性を満足する樹脂組成物が得られる。

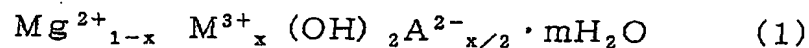
本発明における前記水酸化マグネシウム粒子は、前記 (i)、(ii)、(iii) および (iv) の要件を満足する限り、その調整法は特に制限を受けない。

- 前記 (i) の平均 2 次粒子径および (ii) の比表面積を満足する水酸化マグネシウム粒子は、例えば特開昭 52-115799 号公報に記載された方法および条件を基本的に採用することにより製造することができる。すなわち、塩化マグネシウムまたは硝酸マグネシウムと水酸化アルカリ金属、アンモニア、酸化マグネシウム等のアルカリ物質とを原料とし、これらを水性媒体中、加圧条件下（好ましくは  $5 \sim 30 \text{ kg/cm}^2$ ）加熱することによって製造することができる。その際、原料中の不純物、殊に鉄化合物およびマンガン化合物（さらに必要ならば他の前記金属化合物）、U 化合物および Th 化合物等を含まないかあるいは極めて含有量の少ないものを選択することによって、前記 (iii) および (iv) の要件を満足する水酸化マグネシウム粒子を得ることができる。さらに反応器、精製機、晶析容器、乾燥器、粉碎機などの装置として、前記金属の溶出や混入がない耐腐食性の材質よりなる装置を選択すべきである。

必要ならば、原料としての塩化マグネシウムまたは硝酸マグネシウムおよび前記アルカリ性物質をその中の前記不純物の含有量を低下させるために精製処理を施すことは好ましいことである。

- 得られた水酸化マグネシウム粒子をイオン交換水または工業用水にて洗浄することにより、水溶性アルカリ金属塩を除去できる。

U および Th の除去方法については本発明者等が研究の結果、水酸化マグネシウムの原料中の U を下記式 (1) で表されるハイドロタルサイトにて吸着、除去させる方法が適当であることが解った。



- (式中  $\text{M}^{3+}$  は  $\text{Al}^{3+}$  および  $\text{Fe}^{3+}$  の少なくとも 1 種、  
 $x$  は  $0.2 \leq x < 0.5$  の正数、  
 $\text{A}^{2-}$  は  $\text{CO}_3^{2-}$  および  $\text{SO}_4^{2-}$  の少なくとも 1 種、  
 $m$  は 0 ~ 2 の数を示す。)

- このハイドロタルサイトは天然品でも合成品でもよく、さらに好ましくはこれを水酸化マグネシウム原料に添加し、U化合物を除去する。水酸化マグネシウムの原料であるマグネシウム源と、アルミニウム源でハイドロタルサイトを合成し、濾過し、この濾液である塩化マグネシウムを水酸化マグネシウムの原料としても、
- 5 合成されたハイドロタルサイトがU化合物を吸着しているので、U化合物の少ない塩化マグネシウムが得られる。

一例を示すと下記の通りである。

- 3 L ビーカーに苦汁 ( $\text{MgCl}_2 = 1.9 \text{ mol/L}$ ) 2 L (U含有量は 126 ppb) を入れ、攪拌条件下で 5 N の濃度に調整された塩酸 (和光純薬 K K 製) 2 ml を添加して、室温 (25℃) にて 30 分間攪拌し、pH = 1.6 の苦汁を得た。この苦汁に攪拌しながら 54 g/L の濃度に調整された硝酸アルミニウム (和光純薬 K K 製) 水溶液 20 mL を入れ、さらに 14 重量% に調整されたアンモニア水 (和光純薬 K K 製) 23 mL を攪拌下に滴下しながら加えた後、室温 (25℃) にて 30 分攪拌し、pH = 6.5 の苦汁を得た。
- 15 この苦汁はアルミニウムイオンと一部のマグネシウムイオンが共沈した複水酸化物を含む懸濁液である。これをプフナーロートで吸引濾過し、濾液として塩化マグネシウム ( $\text{MgCl}_2$ ) = 1.7 mol/L の苦汁を得た。

U含有量は 0.8 ng/mL 以下であった。

- この塩化マグネシウムを Mg 源とし、アルカリ源を水酸化カルシウムとして反応させて、水酸化マグネシウムを得た。この水酸化マグネシウムの U 含有量は 2 ppb であった。この U 除去処理により同時に Th も除去できる。
- 20

これを U 除去処理なしの塩化マグネシウムと水酸化カルシウムで反応して得た水酸化マグネシウムの U 含有量と比較した。



表 1

	U (ng/g)	Th (ng/g)
U除去処理 水酸化マグネシウム	2	1>
U除去処理なし 水酸化マグネシウム	270	5>

- 5     ウランおよびトリウム除去の機構は明らかではないが、水酸化マグネシウム粒子の結晶成長が起こり、BET比表面積が小さくなり、粒子の分散性が良好となり、樹脂用添加剤として好適な粉体物性が付与されるものと推定される。

本発明で使用する水酸化マグネシウム粒子は高級脂肪酸、アニオン系界面活性剤、リン酸エステル類、カップリング剤および多価アルコールの脂肪酸エステル  
10   類よりなる群から選ばれた少なくとも一種の表面処理剤で表面処理されてもよい。

表面処理剤として好ましく用いられるものを例示すれば次のとおりである。ステアリン酸、エルカ酸、パルミチン酸、ラウリン酸、ベヘン酸などの炭素数10以上の高級脂肪酸類および前記高級脂肪酸のアルカリ金属塩；ステアリルアルコール、オレイルアルコール等の高級アルコールの硫酸エステル塩；ポリエチレングリコールエーテルの硫酸エステル塩、アミド結合硫酸エステル塩、エステル結合硫酸エステル塩、エステル結合スルホネート、アミド結合スルホン酸塩、エーテル結合スルホン酸塩、エーテル結合アルキルアリールスルホン酸塩、エステル結合アルキルアリールスルホン酸塩、アミド結合アルキルアリールスルホン酸塩  
15   等のアニオン系界面活性剤類；オルトリン酸とオレイルアルコール、ステアリルアルコール等のモノまたはジエステルまたは両者の混合物であって、それらの酸型またはアルカリ金属塩またはアミン塩等のリン酸エステル類； $\gamma$ -(2-アミノエチル) アミノプロピルトリメトキシシラン、 $\gamma$ -(2-アミノエチル) アミ  
20

- ノプロビルメチルジメトキシシラン、 $\gamma$ -メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、N- $\beta$ - (N-ビニルベンジルアミノエチル) - $\gamma$ -アミノプロピルトリメトキシシラン・塩酸塩、 $\gamma$ -グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、 $\gamma$ -メルカプトプロピルトリメトキシシラン、メチルトリメトキシシラン、メチルトリエトキシシラン、ビニルトリアセトキシシラン、 $\gamma$ -クロロプロピルトリメトキシシラン、ヘキサメチルジシラザン、 $\gamma$ -アニリノプロピルトリメトキシシラン、ビニルトリメトキシシラン、オクタデシルジメチル [3- (トリメトキシシリル) プロピル] アンモニウムクロライド、 $\gamma$ -クロロプロビルメチルジメトキシシラン、 $\gamma$ -メルカプトプロビルメチルジメトキシシラン、メチルトリクロロシラン、ジメチルジクロロシラン、トリメチルクロロシラン、ビニルトリクロロシラン、ビニルトリエトキシシラン、ビニルトリス ( $\beta$ -メトキシエトキシ) シラン、 $\beta$ - (3, 4-エポキシシクロヘキシル) エチルトリメトキシシラン、 $\gamma$ -グリシドキシプロビルメチルエトキシシラン、 $\gamma$ -グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、 $\gamma$ -メタクリロキシプロビルメチルジメトキシシラン、 $\gamma$ -メタクリロキシプロビルメチルジエトキシシラン、 $\gamma$ -メタクリロキシプロピルトリエトキシシラン、N- $\beta$  (アミノエチル)  $\gamma$ -アミノプロビルメチルジメトキシシラン、N- $\beta$  (アミノエチル)  $\gamma$ -アミノプロピルトリメトキシシラン、N- $\beta$  (アミノエチル)  $\gamma$ -アミノプロピルトリエトキシシラン、 $\gamma$ -アミノプロピルトリメトキシシラン、 $\gamma$ -アミノプロピルトリエトキシシラン、N-フェニル- $\gamma$ -アミノプロピルトリメトキシシラン、 $\gamma$ -グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、 $\gamma$ -メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、等のシランカップリング剤；イソプロピルトリイソステアロイルチタネート、イソプロピルトリス (ジオクチルパイロフォスフェート) チタネート、イソプロピルトリ (N-アミノエチル-アミノエチル) チタネート、イソプロピルトリデシルベンゼンスルホンチタネート、テトラオクチルビス (ジトリデシルホスファイト) チタネート、ビス (ジオクチルパイロフォスフェート) オキシアセテートチタネート、イソプロピルトリドデシルベンゼンスルホンチタネート、テトライソプロピルビス (ジオクチルホスファイト) チタネート、テトラ (2, 2-ジアリルオキシメ

- チル-1-ブチル) ビス- (ジトリデシル) ホスファイトチタネート、ビス (ジオクチルパイロフォスフェート) エチレンチタネート、イソプロピルトリオクタンイルチタネート、イソプロピルジメタクリルイソステアロイルチタネート、イソプロピルイソステアロイルジアクリルチタネート、イソプロピルトリ (ジオクチルホスフェート) チタネート、イソプロピルトリクミルフェニルチタネート、ジクミルフェニルオキシアセテートチタネート、ジイソステアロイルエチレンチタネート等のチタネート系カップリング剤類; アセトアルコキシアルミニウムジイソプロピレート等のアルミニウム系カップリング剤類、トリフェニルホスファイト、ジフェニル・トリデシルホスファイト、フェニル・ジトリデシルホスファイト、フェニル・イソデシルホスファイト、トリ・ノニルフェニルホスファイト、4, 4'-ブチリデン-ビス (3-メチル-6-tert-ブチルフェニル) -ジトリデシルホスファイト、トリラウリルチオホスファイト等、グリセリンモノステアレート、グリセリンモノオレエート等の多価アルコールと脂肪酸等。

- 前記表面処理剤による水酸化マグネシウム粒子の表面処理方法はそれ自体公知の湿式または乾式法により実施出来る。例えば湿式法としては、水酸化マグネシウム粒子のスラリーに該表面処理剤を液状、またはエマルジョン状に加え、約 100℃までの温度で機械的に十分混合すればよい。

- 乾式法としては、水酸化マグネシウム粒子をヘンシェルミキサー等の混合機により、十分攪拌下で表面処理剤を液状、エマルジョン状、固形状に加え、加熱または非加熱下で十分混合すればよい。表面処理剤の添加量は、適宜選択出来るが、水酸化マグネシウム粒子に対し、0.01~10重量%、好ましくは、0.05~5重量%である。

- 表面処理をした水酸化マグネシウム粒子は、必要により、例えば水洗、脱水、造粒、乾燥、粉碎、分級等の手段を適宜選択して実施し、最終製品形態とすることが出来る。また前記表面処理剤は、合成樹脂と水酸化マグネシウム粒子との混練時に添加することもできる。

本発明の樹脂組成物において、前記 (a) 熱硬化性樹脂と (b) 水酸化マグネシウム粒子との割合は、(a) 熱硬化性樹脂 100重量部に対して、(b) 水酸

化マグネシウム粒子5～500重量部、好ましくは、50～300重量部が適当である。

- また本発明の樹脂組成物には、必要に応じて(b)水酸化マグネシウム粒子以外の(c)無機充填剤を配合することができる。(c)無機充填剤は、強度向上
- 5 または吸湿性低減の目的で配合される。本発明において、(c)無機充填剤を配合する場合、その例としては、非晶性シリカ、結晶性シリカ、炭酸カルシウム、炭酸マグネシウム、アルミナ、マグネシア、窒化珪素、酸化マグネシウムアルミニウム、ジルコニア、ジルコン、クレー、タルク、ワラストナイト、珪酸カルシウム、酸化チタン、酸化アンチモン、アスベスト、ガラス繊維、硫酸カルシウム、
- 10 窒化アルミニウムなどが挙げられる。これらは球状、破碎状、繊維状など任意の形状の物が使用できる。(c)無機充填剤の好ましい具体例としては非晶シリカ、結晶性シリカ、アルミナであり、この場合の(c)無機充填剤の配合量は、
- (b)水酸化マグネシウム粒子と(c)無機充填剤の合計量として樹脂組成物全体の60～95重量%、好ましくは、70～90重量%の範囲となる量が適当である。(c)無機充填剤は、成形性の良い、すなわち、流動性が良く、低粘度の
- 15 ものが要求される。

- 本発明の熱硬化性樹脂としては、半導体封止剤、電子部品の積層基板、多層回路基板およびプリント配線基板などに使用される樹脂であればよいが、具体的にはエポキシ樹脂、シリコーン樹脂、フェノール樹脂、ジアリールフタレート樹脂、
- 20 尿素樹脂、メラミン樹脂またはアルキッド樹脂が挙げられる。これらのうちエポキシ樹脂が好適である。

本発明におけるエポキシ樹脂としては、特に限定されるものではないが、例えば下記のものが挙げられる。

- (1)ビスフェノールA型エポキシ樹脂、ビスフェノールF型エポキシ樹脂、2, 2', 6, 6'-テトラメチルビスフェノールA型エポキシ樹脂、ビスフェノールS型エポキシ樹脂、ビスフェノールAD型エポキシ樹脂およびテトラメチルビスフェノールA型エポキシ樹脂等のビスフェノール型エポキシ樹脂；
- 25

- (2)ビスフェノール型エポキシ樹脂、ビスフェノールヘキサフルオロアセトンジ

グリシジルエーテル、ビス- $\beta$ -トリフルオロメチルジグリシジルビスフェノールA、レゾルシノージグリシジルエーテルなどのその他の2官能型エポキシ樹脂、ナフタレン骨格およびジシクロペンタジエン骨格などを有する多官能型エポキシ樹脂、

- 5 (3) 1, 6-ジグリシジルオキシナフタレン型エポキシ樹脂、1-(2, 7-ジグリシジルオキシナフチル)-1-(2-グリシジルオキシナフチル)メタン、1, 1-ビス(2, 7-ジグリシジルオキシナフチル)メタン、1, 1-ビス(2, 7-ジグリシジルオキシナフチル)-1-フェニルメタン等のナフタレン系エポキシ樹脂
- 10 (4) フェノールノボラック型エポキシ樹脂、クレゾールノボラック型エポキシ樹脂、オルトクレゾールノボラック型エポキシ樹脂、ビスフェノールAノボラック型エポキシ樹脂、ビスフェノールADノボラック型エポキシ樹脂、臭素化フェノールノボラック型エポキシ樹脂、臭素化ビスフェノールAノボラック型エポキシ樹脂等のノボラック型エポキシ樹脂、サリチルアルデヒドノボラック型エポキシ樹脂、
- 15 (5) 前記ビスフェノール型エポキシ樹脂と、ノボラック型エポキシ樹脂とを、ビスフェノールおよび/またはハロゲン化ビスフェノールを介して共重合させたエポキシ樹脂、
- (6) ジシクロペンタジエンとフェノールとの重付加体のエポキシ化物に代表される環式脂肪族エポキシ樹脂、
- 20 (7) フタル酸ジグリシジルエステル、テトラヒドロフタル酸ジグリシジルエステル、ヘキサヒドロフタル酸ジグリシジルエステル、ジグリシジルp-オキシ安息香酸、ダイマー酸グリシジルエステル、トリグリシジルエステル等のグリシジルエステル型エポキシ樹脂、ジグリシジルエステル型エポキシ樹脂、
- 25 (8) テトラグリシジルアミノジフェニルメタン、トリグリシジルp-アミノフェノール、テトラグリシジルm-キシリレンジアミン等のグリシジルアミン型エポキシ樹脂、ヒダントイン型エポキシ樹脂、トリグリシジルイソシアヌレートなどの複素環式エポキシ樹脂、

(9) フロログリシノールトリグリシジルエーテル、トリヒドロキシビフェニルトリグリシジルエーテル、トリヒドロキシフェニルメタントリグリシジルエーテル、グリセリントリグリシジルエーテル、2-[4-(2, 3-エポキシプロポキシ)フェニル]-2-[4-[1, 1-ビス[4-(2, 3-エポキシプロポキシ)フェニル]エチル]フェニル]プロパン、1, 3-ビス[4-[1-[4-(2, 3-エポキシプロポキシ)フェニル]-1-[4-(2, 3-エポキシプロポキシ)フェニル]-1-メチルエチル]フェニル]エチル]フェノキシ]-2-プロパノール、テトラヒドロキシフェニルエタンテトラグリシジルエーテル、テトラグリシジルベンゾフェノン、ビスレゾルシノールテトラグリシジルエーテル等のグリシジルエーテル型エポキシ樹脂、テトラグリシドキシビフェニル等のビフェニル型エポキシ樹脂、

(10) その他、脂環式エポキシ樹脂、イソシアネート型エポキシ樹脂、脂肪族鎖状エポキシ樹脂、およびそれらのハロゲン化物、水素添加物、芳香族アミンおよび複素環式窒素塩基からのN-グリシジル化合物、たとえば、N, N-ジグリシジルアニリン、トリグリシジルイソシアヌレート、N, N, N', N'-テトラグリシジルービス(p-アミノフェニル)-メタンなど、トリフェノールメタン型エポキシ樹脂、アラルキル基含有エポキシ樹脂等が挙げられる。

また、これらのエポキシ樹脂と、エポキシ基、カルボキシル基、アミノ基などの官能基を有するシリコーンオリゴマー、アクリロニトリル、ブタジエン、イソブレン等の単量体から得られる重合体あるいはポリアミド樹脂などを反応させて得られる各種変性エポキシ樹脂が挙げられる。上記エポキシ樹脂はそれぞれ単独で使用してもよいし、2種以上の混合物、または、変性エポキシ樹脂を併用してもよい。

熱硬化性樹脂の硬化剤としては、特に限定されるものではないが、例えばアミン系硬化剤、酸無水物系硬化剤、ノボラック樹脂またはオリゴマー硬化剤を各々の目的に応じて使用することができる。硬化剤の具体例を以下に示す。

具体的には、まず、アミン系硬化剤としては、下記のもものが例示される。例えば、ジエチレントリアミン、トリエチレンテトラミン、テトラエチルペンタミン、

- ジプロピレントリアミン、ビス（ヘキサメチレン）トリアミン、1, 3, 6-トリシアミノメチルヘキサン、トリメチルヘキサメチレンジアミン、ジエチルアミノプロピルアミン、メンセンジアミン、イソフォロンジアミン、ビス（4-アミノ-3-メチルシクロヘキシル）メタン等の脂肪族ポリアミン；メタキシリレン
- 5 ジアミン、メタフェニレンジアミン、ジアミノジフェニルメタン、ジアミノジフェニルスルホン、ベンジルジメチルアミン、2-（ジメチルアミノメチル）フェノール、2, 4, 6-トリス（ジメチルアミノメチル）フェノール、2, 4, 6-トリス（ジメチルアミノメチル）フェノールのトリ-2-エチルヘキシル酸塩等の芳香族系ジアミン；
- 10 ジシアンジアミド、ジシアンジアミドの有機酸ヒドラジッド、トリメチルグアニジン、ジメチルグアニジン等のグアニジン系化合物；
- 2-メチルイミダゾール、2-エチル-4-メチルイミダゾール、2-ウンデシルイミダゾール、2-ヘプタデシルイミダゾール、2-フェニルイミダゾール、1-ベンジル-2-メチルイミダゾール等のイミダゾール類；
- 15 ピペリジン、N-アミノエチルピペラジン、N, N'-ジメチルピペラジン、ピリジンピコリン、3, 9-ビス（3-アミノプロピル）-2, 4, 8, 10-テトラスピロ〔5, 5〕ウンデカン、1, 4-ジアザジシクロ（2, 2, 2）オクタン、1, 8-ジアザビシクロウンデカン（DBU）等のその他の環状アミン；
- 20 ジオキシエチレンジアミン、トリオキシエチレンジアミン、ポリオキシエチレンジアミン、ポリアミン-エチレンオキシドアダクト、ポリアミン-プロピレンオキシドアダクト等のポリエーテル系アミン；
- トリメタノールアミン、トリエタノールアミン、ジエタノールアミン等のアルカノールアミン；
- 25 その他、主鎖にシリコーン骨格を有するジアミン、ポリアミンエポキシ樹脂アダクト、シアノエチル化ポリアミン、ケチミン系化合物、1-シアノエチル体、並びに、1-シアノエチル体のトリメリット酸塩、4級塩、イソシアヌル酸塩およびヒドロキシメチル体等；

その他の潜在性のアミン系硬化剤として3フッ化ホウ素-アミンコンプレックス(錯体)、ジアミノマレオニトリルとその誘導体、メラミン、メラミン誘導体等が挙げられる。

- 次に酸無水物系硬化剤としては、例えば、無水フタル酸、無水トリメリット酸、
- 5 エチレングリコールビス(アンヒドロトリメリテート)、グリセロールトリス(アンヒドロトリメリテート)、無水ピロメリット酸、3, 3', 4, 4-ベンゾフェノンテトラカルボン酸無水物等の芳香族酸無水物、無水マレイン酸、無水コハク酸、テトラヒドロ無水フタル酸、メチルテトラヒドロ無水フタル酸、無水メチルナジック酸、アルケニル無水コハク酸、ヘキサヒドロ無水フタル酸、メチルヘキサヒドロ無水フタル酸、メチルシクロヘキセンテトラカルボン酸無水物、
- 10 並びにリノール酸、リノレン酸およびエレオステアリン酸等と無水マレイン酸との付加体等のメチルエステル、トリグリセライドと無水マレイン酸との付加体等の環状脂肪族酸無水物；ポリアジピン酸無水物、ポリアゼイン酸無水物、ポリセバシン酸無水物等の直鎖状脂肪族酸無水物；クロレンド酸無水物、テトラプロモ
- 15 無水フタル酸等々のハロゲン化酸無水物が挙げられる。

- 次にオリゴマー硬化剤として、フェノールノボラック樹脂、クレゾールノボラック樹脂、BPAノボラック樹脂、ビフェノールノボラック樹脂、および、それらのハロゲン置換体等のノボラック型フェノール樹脂、アミノ樹脂、レゾール型フェノール樹脂、アニリン-ホルマリン樹脂、ポリビニルフェノール樹脂等が挙げ
- 20 げられる。

- その他として、芳香族ジアゾニウム塩、ジアリルヨードニウム塩、トリアリルスルホニウム塩、トリアリルセレンニウム塩、アクリジンオレンジ、ベンゾフラビン、セトフラビンT等の光、紫外線硬化剤、ポリメルカプタン、ポリスルヒド樹脂等のポリメルカプタン系硬化剤等が挙げられる。硬化剤の配合量は熱硬化性樹脂
- 25 脂100重量部に対して10~200重量部、好ましくは50~150重量部がよい。

硬化促進剤としては公知のものが使用できるが、例えば、ルイス酸、アミン錯塩、イミダゾール化合物、有機リン化合物、第3級アミン、第4級アンモニウム



- 塩などが用いられる。具体的にはイミノ基をアクリロニトリル、イソシアネート、メラミン、アクリレートまたはエポキシ等でマスク化したイミダゾールが挙げられる。このイミダゾール化合物としては、例えばイミダゾール、2-エチルイミダゾール、2-エチル-4-メチルイミダゾール、2-フェニルイミダゾール、
- 5 2-ウンデシルイミダゾール、1-ベンジル-2-メチルイミダゾール、2-ヘプタデシルイミダゾール、4, 5-ジフェニルイミダゾール、2-メチルイミダゾリン、2-エチル-4-メチルイミダゾリン、2-フェニルイミダゾリン、2-ウンデシルイミダゾリン、2-ヘプタデシルイミダゾリン、2-イソプロピルイミダゾール、2, 4-ジメチルイミダゾール、2-フェニル-4-メチルイミ
- 10 ダゾール、2-エチルイミダゾリン、2-イソプロピルイミダゾリン、2, 4-ジメチルイミダゾリン、2-フェニル-4-メチルイミダゾリン等がある。マスク化剤としてはアクリロニトリル、フェニレンジイソシアネート、トルエンジイソシアネート、ナフタレンジイソシアネート、ヘキサメチレンジイソシアネート、メチレンビスフェニルイソシアネート、メラミンアクリレートおよび各種エポキ
- 15 シ等がある。また、1, 8-ジアザビシクロ(5, 4, 0)ウンデセン-7などのジアザビシクロアルケンおよびその誘導体；トリエチレンジアミン、ベンジルジメチルアミン、トリエタノールアミン、ジメチルアミノエタノール、トリス(ジメチルアミノメチル)フェノールなどの三級アミン類；トリブチルホスフィン、メチルジフェニルホスフィン、トリフェニルホスフィンなどの有機ホスフィン類；テトラフェニルホスホニウム・テトラフェニルボレートなどのテトラ置換
- 20 ホスホニウム・テトラ置換ボレート、2-エチル-4-メチルイミダゾール・テトラフェニルボレート、N-メチルモルホリン・テトラフェニルボレートなどのテトラフェニルボロン塩などがある。これらの硬化促進剤は何種類かを併用してもよい。
- 25 プリント配線基板の製造工程におけるソルダーレジストの形成方法としてフォトリソ法が行われており、両面同時露光が実施されるようになってきた。このためコンポジット積層板においても、両面同時露光に対応するため、紫外線を透過しないようにすることが求められるようになってきた。

紫外線不透過性積層板としては、マトリックス樹脂に紫外線吸収剤を配合した積層板、ガラス繊維系基材に紫外線遮蔽剤を付着させた積層板が知られている。マトリックス樹脂に配合する有機紫外線遮蔽剤としては、有機紫外線吸収剤、例えばヒドロキシベンゾフェノン類、ヒドロキシベンゾトリアゾール類、ジアミノ

5 スチリルベンジルスルホン酸誘導体、イミダゾール誘導体、クマリン誘導体などがあげられる。このようなものとしては、2-ヒドロキシ-4-オクトキシベンゾフェノン、2-(2-ヒドロキシ-5-メチルフェニル)ベンゾトリアゾール、4-メチル-7-ジエチルアミノクマリン、ビス-(1,5-ジフェニルピラゾリン-3-イル)-スチレン、1-(フェニル)-3-3-(4-tert

10 -ブチルスチリル)-5-(4-tert-ブチルフェニル)-ピラゾリンなどが挙げられる。

無機紫外線遮蔽剤としては、例えば、 $Zn_xAl_2O_{3+x}$  ( $x=1\sim10$ )、酸化チタン、クレイや炭酸カルシウムなどがある。これらを2種以上併用してもよい。

15 紫外線吸収剤、または紫外線遮蔽剤は、樹脂組成物に対して0.001~2重量%含有するのが好ましい。含有量が0.001重量%より少ないと効果が少なく、2重量%を超えると加熱による変色が起こる。

本発明の樹脂組成物において、その他必要に応じて硬化剤天然ワックス、合成ワックス、高級脂肪酸およびその金属塩類、若しくはパラフィンなどの離型剤；

20 カーボンブラックのような着色剤、顔料、発泡剤、可塑剤、充填剤、受酸剤、補強剤、酸化防止剤、帯電防止剤、滑剤、安定剤、硬化促進剤、などを添加してもよい。

また低応力化するために、各種エラストマーを添加またはあらかじめ反応して用いてもよい。具体的には、ポリブタジエン、ブタジエン-アクリロニトリル共

25 重合体、シリコーンゴム、シリコーンオイルなどの添加型あるいは反応型のエラストマーなどが挙げられる。本発明の樹脂組成物は各成分を熔融混練することにより混合するのが好ましく、例えばニーダー、ロール単軸若しくは二軸の押し出し機またはコニーダーなどの公知の混練方法を用いて熔融混練することにより製

造される。

本発明の樹脂組成物は、通常粉末またはタブレット状態で電子部品の成形に供される。例えば半導体を基板に固定した電子部品を樹脂組成物により成形する方法としては、低圧トランスファー成形法が一般的であり、インジェクション成形  
5 法や圧縮成形法も可能である。成形条件としては、例えば樹脂組成物を成形温度 150～200℃、圧力5～15MPa、成形時間30～300秒で成形し、樹脂組成物の硬化物とすることによって封止された半導体成形物が製造される。また、必要に応じて上記成形物を100～200℃で2～15時間、追加加熱処理をしてもかまわない。

10

#### 実施例

実施例中、%および部とあるのは、特に断らない限り、重量%および重量部を意味する。実施例中、水酸化マグネシウム粒子の特性および成形物の物性の測定は下記の方法で行なった。成形はトランスファー成形をおこなった。

#### 15 (1) 水酸化マグネシウム粒子の平均2次粒子径

MICROTRAC粒度分析計SPAタイプ[LEEDS & NORTH  
UP INSTRUMENTS 社製]を用いて測定決定した。

試料粉末700mgを70mlの水に加えて、超音波(NISSEI 社製,  
MODEL US-300、電流300μA)で3分間分散処理した後、その分  
20 散液の2～4mlを採って、250mlの脱気水を収容した上記粒度分析計の試料室に加え、分析計を作動させて8分間その懸濁液を循環した後、粒度分布を測定する。合計2回の測定を行ない、それぞれの測定について得られた50%累積2次粒子径の算術平均値を算出して、試料の平均2次粒子径とする。

#### (2) 水酸化マグネシウム粒子のBET法比表面積

25 液体窒素の吸着法により測定した。

#### (3) UおよびTh含有量

ICP-MS (Inductivity Coupled Plasma-Mass Spectrometry) または原子吸光法により測定した。

(4) 水溶性アルカリ金属塩および塩素 (C1) 含有量  
原子吸光法により測定した。

(5) 重金属の含有量  
ICP質量分析法により測定した。

5 (6) 難燃性  
UL 94VE法に準じて測定した。

(7) 熱伝導率  
京都電子工業 (株) 製のQTM迅速熱伝導率計を用いて、プローブ法にて測定した。

10 (8) 熱安定性  
装置: タバイエスペック製ギアオープンGPHH-100  
設定条件: 150℃、ダンパー開度50%  
試験片2本を1組として上部を紙で挟んで金属製クリップでとめ、回転リングに吊し、経時的に抜き取る。

15 テストピース: 1/12インチ  
判定: テストピースに白化が認められるまでの時間を熱劣化の目安とした。  
(9) 成形品の耐水絶縁性の試験

合成樹脂は4辺がハサミで切断された各辺が10cmの正方形で、厚さ2mmの直方体からなるテストピースを、95℃のイオン交換水中に48時間浸漬した  
20 後取り出して紙タオルで表面の水分を拭き取り、23℃±2℃、50%RHの状態調節を15分間行った。このテストピースを同じ状態調節下で、タケダ理研工業 (株) のTR8401を用いて体積固有抵抗を測定し、耐水絶縁性のデータを得た。ただしEVAのテストピースは70℃のイオン交換水に168時間浸漬した。

25 (10) 半田耐熱性  
JIS C6481に準じた。煮沸2時間の吸湿処理を行った後、260℃の半田槽に180秒間浮かべた後の、外観の異常の有無を調べた。

(11) 吸水率

恒温恒湿槽（アドバンテック東洋 AGX-326）を用い85℃、85%RHの条件で重量変化を測定した。

実施例で使用した水酸化マグネシウム粒子（A-1～A-5）の性状を下記表2に示す。ただしA-2およびA-3はA-1を表面処理したものである。

- 5 水酸化マグネシウム粒子の表面処理の有無および使用した表面処理剤の種類は下記のとおりである。なお表面処理剤を使用した場合、その量は水酸化マグネシウム粒子に対して2重量%であった。

	<u>水酸化マグネシウム粒子の種類</u>	<u>表面処理</u>
10	A-1	なし
	A-2	ステアリン酸
	A-3	エポキシシランカップリング剤
	A-4	なし
	A-5	なし

表 2

水酸化マグネシウム 粒子種類		A-1	A-2	A-3	A-4	A-5
平均 2 次粒子径	( $\mu\text{m}$ )	1.67	1.68	1.67	1.1	3.2
比表面積 (BET法)	( $\text{m}^2/\text{g}$ )	2.7	2.6	2.7	9.5	2.6
Fe	(%)	0.0017	0.0018	0.0016	0.0060	0.0010
Mn	(%)	0.0001>	0.0001>	0.0001>	0.0001>	0.0001>
Cl	(%)	0.014	0.011	0.009	0.012	0.013
U+Th	(ppb)	3	2	3	2	3
Cu	(%)	0.0010	0.0010	0.0010	0.0011	0.0009
V	(%)	0.0001>	0.0001>	0.0001>	0.0001>	0.0001>
Co	(%)	0.0001>	0.0001>	0.0001>	0.0001>	0.0001>
Ni	(%)	0.0010	0.0009	0.0010	0.0009	0.0012
Cr	(%)	0.0001>	0.0001>	0.0001>	0.0001>	0.0001>
水溶性アルカリ金属 塩の合計含有量 (アルカリ金属換算)	(%)	0.003>	0.003>	0.003>	0.003>	0.003>

## 5 実施例 1～10

表 3 に示した各成分を表 3 の組成比でミキサーによりドライブレンドした。これを、ロール表面温度 90℃ のミキシングロールを用いて 5 分間加熱混練後、冷却粉碎してエポキシ樹脂組成物のテストピースを製造した。

このテストピースを用いて、熱伝導率、難燃性、熱安定性を前述の方法により測定した。その結果を表 3 に示した。

10

表 3

実施例	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
エポキシ樹脂	100 部									
硬化剤	80									
硬化促進剤	1									
水酸化マグネシウム 粒子種類	A-1	A-2	A-3	A-4	A-5	A-1	A-2	A-3	A-1	A-3
水酸化マグネシウム 粒子の量	20									
シリカ	1000									
熱伝導率(W/mK)	1.01	1.01	1.02	1.00	1.03	1.89	1.90	1.93	4.93	4.91
白化までの日数(日)	20<	20<	20<	20<	20<	20<	20<	20<	20<	20<
難燃性 (UV94VE 1/8(分))	V-0	V-0	V-0	V-0	V-0	V-0	V-0	V-0	V-0	V-0
耐水絶縁性 (95℃x48hrs後 Ω・cm)	$1 \times 10^{12} <$	$1 \times 10^{12} <$	$1 \times 10^{12} <$	$1 \times 10^{12} <$	$1 \times 10^{12} <$	$1 \times 10^{12} <$	$1 \times 10^{12} <$	$1 \times 10^{12} <$	$1 \times 10^{12} <$	$1 \times 10^{12} <$

エポキシ樹脂 : 東都化成株式会社製 エポトートYDCN-500-6

硬化剤 : 大日本インキ化学工業株式会社製 フェノライト TD-2131

硬化促進剤 : 北興化学工業株式会社 トリフェニルホスフィン TPP

シリカ : 株式会社 龍森 クリスタライト 平均粒径4 μm

## 実施例 11～20

表4に示した各成分を表4の組成比でミキサーによりドライブレンドした。これを、ロール表面温度90℃のミキシングロールを用いて5分間加熱混練後、冷却粉碎してエポキシ樹脂組成物のテストピースを製造した。

- 5 このテストピースを用いて、熱伝導率、難燃性、熱安定性、半田耐熱性および吸水率を前述の方法により測定した。その結果を表4に示した。



表 4

実施例	11	12	13	14	15	16	17	18	19	20
エポキシ樹脂	100部									
硬化剤	80									
硬化促進剤	1									
紫外線遮蔽剤	0.1									
水酸化マグネシウム 粒子の種類	A-1	A-2	A-3	A-4	A-5	A-1	A-2	A-3	A-1	A-3
水酸化マグネシウム (量)	20									
シリカ	1000									
半田面熱性	異なり	異なり	異なり	異なり	異なり	異なり	異なり	異なり	異なり	異なり
白化までの日数(日)	20<	20<	20<	20<	20<	20<	20<	20<	20<	20<
難燃性 (UV94VB 1/8インチ)	V-0	V-0	V-0	V-0	V-0	V-0	V-0	V-0	V-0	V-0
耐水絶縁性 (95°C×48hrs後 Ω・cm)	$1 \times 10^{12} <$	$1 \times 10^{12} <$	$1 \times 10^{12} <$	$1 \times 10^{12} <$	$1 \times 10^{12} <$	$1 \times 10^{12} <$	$1 \times 10^{12} <$	$1 \times 10^{12} <$	$1 \times 10^{12} <$	$1 \times 10^{12} <$
吸水率 (%)	0.45	0.43	0.42	0.48	0.44	0.26	0.28	0.30	0.25	0.21

エポキシ樹脂 : 東都化成株式会社製 エポトートYDCN-500-6

硬化剤 : 大日本インキ化学工業株式会社製 フェノライト TD-2131

硬化促進剤 : 北興化学工業株式会社 トリフェニルホスフィン TPP

シリカ : 株式会社 龍森 クリスタライト 平均粒径4μm

紫外線遮蔽剤 : 協和化学工業株式会社 亜鉛アルミニウム酸化物 ( $Zn_4Al_2O_7$ )

## 請 求 の 範 囲

1. (a) 熱硬化性樹脂および (b) 水酸化マグネシウム粒子よりなる熱硬化性樹脂組成物であって、該水酸化マグネシウム粒子は下記 (i) ~ (iv) の要件を
- 5 満足することを特徴とする電機および電子機器用熱可塑性樹脂組成物。
- (i) レーザー回折散乱法で測定された平均2次粒子径が0.5~5  $\mu\text{m}$
- (ii) BET法比表面積が0.1~10  $\text{m}^2/\text{g}$
- (iii) Fe化合物およびMn化合物の含有量の合計量が金属として0.02重量%以下、かつ
- 10 (iv) U化合物およびTh化合物の含有量の合計量が金属に換算して10ppb以下
2. 水酸化マグネシウム粒子は、レーザー回折散乱法で測定された平均2次粒子径が0.7~3  $\mu\text{m}$ の範囲である請求項1記載の熱硬化性樹脂組成物。
- 15 3. 水酸化マグネシウム粒子は、BET法による比表面積が0.2~5  $\text{m}^2/\text{g}$ の範囲である請求項1記載の熱硬化性樹脂組成物。
4. 水酸化マグネシウム粒子は、鉄化合物およびマンガン化合物の含有量が合計
- 20 で金属に換算して0.01重量%以下である請求項1記載の熱硬化性樹脂組成物。
5. 水酸化マグネシウム粒子は、鉄化合物、マンガン化合物、コバルト化合物、クロム化合物、銅化合物、バナジウム化合物、およびニッケル化合物の合計含有量が、金属に換算して0.02重量%以下である請求項1記載の熱硬化性樹脂組
- 25 成物。
6. 水酸化マグネシウム粒子は、U化合物およびTh化合物の合計含有量が、金属に換算して5ppb以下である請求項1記載の熱硬化性樹脂組成物。

7. 水酸化マグネシウム粒子は、U化合物およびTh化合物の合計含有量が、金属に換算して1 p p b以下である請求項1記載の熱硬化性樹脂組成物。
- 5 8. 水酸化マグネシウム粒子は、水溶性のアルカリ金属化合物の含有量の合計が、アルカリ金属に換算して、0.05重量%以下である請求項1記載の熱硬化性樹脂組成物。
9. 水酸化マグネシウム粒子は、水溶性のアルカリ金属化合物の含有量の合計が、
- 10 アルカリ金属に換算して、0.03重量%以下である請求項1記載の熱硬化性樹脂組成物。
10. 水酸化マグネシウム粒子は、水溶性のアルカリ金属化合物の含有量の合計が、アルカリ金属に換算して、0.003重量%以下である請求項1記載の熱硬化性樹脂組成物。
- 15 11. 熱硬化性樹脂が、エポキシ樹脂、シリコン樹脂、フェノール樹脂、ジアリールフタレート樹脂、尿素樹脂、メラミン樹脂またはアルキッド樹脂である請求項1記載の熱硬化性樹脂組成物。
- 20 12. 熱硬化性樹脂がエポキシ樹脂である請求項1記載の熱硬化性樹脂組成物。
13. 該水酸化マグネシウム粒子が、高級脂肪酸類、アニオン系界面活性剤、リン酸エステル類、シリコン類、カップリング剤および多価アルコールの脂肪酸
- 25 エステル類よりなる群から選ばれた少なくとも1種の表面処理剤により、表面処理されている請求項1記載の熱硬化性樹脂組成物。
14. 熱硬化性樹脂と水酸化マグネシウムの割合が熱硬化性樹脂100重量部に

対し、水酸化マグネシウム粒子5～500重量部である請求項1記載の熱硬化性樹脂組成物。

15 15. 熱硬化性樹脂と水酸化マグネシウム粒子の割合が熱硬化性樹脂100重量部に対し、水酸化マグネシウム50～300重量部である請求項1記載の熱硬化性樹脂組成物。

10 16. さらに水酸化マグネシウム粒子以外の(C)無機充填剤を含み、この両者の合計量が樹脂組成物に対して60～95重量%配合する請求項1記載の熱硬化性樹脂組成物。

17. 硬化剤を熱硬化性樹脂100重量部に対し、10～200重量部配合する請求項1記載の熱硬化性樹脂組成物。

15 18. さらに紫外線吸収剤または紫外線遮蔽剤を樹脂組成物に対して、0.001～2重量%含有する請求項1記載の熱硬化性樹脂組成物。

19. 請求項1記載の熱硬化性樹脂組成物を硬化して得られた電機および電子機器用成形品。

20

20. 請求項1記載の熱硬化性樹脂組成物を硬化して得られた半導体封止成形品。

21. 請求項1記載の熱硬化性樹脂組成物を硬化して得られた電子部品積層基板成形品。

25

22. 請求項1記載の熱硬化性樹脂組成物を硬化して得られた電子多層回路基板成形品。

23. 請求項1記載の熱硬化性樹脂組成物を硬化して得られたプリント配線基板成形品。

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP01/03771

<b>A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER</b> Int.Cl <sup>7</sup> C08L101/00, C08K3/22, H05K1/03, H05K3/46, H01L23/29		
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
<b>B. FIELDS SEARCHED</b> Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) Int.Cl <sup>7</sup> C08L1/00-101/16, C08K3/00-13/08, H05K1/03, H05K3/46, H01L23/29		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used) WPI/L		
<b>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</b>		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 3-505863 A (Veitscher Magnesitwerke-Actien-Gesellschaft), 19 December, 1991 (19.12.91), Claims; working example & WO 90/13516 A	1-23
Y	JP 11-11930 A (Matsushita Electric Works, Ltd.), 19 January, 1999 (19.01.99), Claims; Par. No. [0003] (Family: none)	1-23
Y	EP 780425 A1 (Kyowa Chemical Ind. Co., Ltd.), 25 June, 1997 (25.06.97), Claims; working example & JP 09-227784 A Claims; working example & US 6025424 A	1-23
<input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input type="checkbox"/> See patent family annex.		
* Special categories of cited documents: "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier document but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed		"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art "&" document member of the same patent family
Date of the actual completion of the international search 25 July, 2001 (25.07.01)		Date of mailing of the international search report 07 August, 2001 (07.08.01)
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office		Authorized officer
Facsimile No.		Telephone No.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP01/03771

## C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	EP 906933 A1 (Kyowa Chemical Ind. Co., Ltd.), 07 April, 1999 (07.04.99), Claims; working example & JP 11-181305 A Claims; working example & US 6130282 A	1-23

## 国際調査報告

国際出願番号 PCT/JP01/03771

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> C08L101/00, C08K3/22, H05K1/03, H05K3/46,  
H01L23/29

## B. 調査を行った分野

## 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> C08L1/00-101/16, C08K3/00-13/08, H05K1/03,  
H05K3/46, H01L23/29

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)  
WPI/L

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	JP 3-505863 A (ファイトシェル・マグネジット ヴ ェルケー・アクチエー・ゲゼルシャフト) 19. 12月. 1991 (19. 12. 91), 特許請求の範囲、実施例 & WO 90/13516 A	1-23
Y	JP 11-11930 A (松下電工株式会社) 19. 1月. 1 999 (19. 01. 99), 特許請求の範囲、第【0003】段落 (ファミリーなし)	1-23

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)  
「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  
「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

## の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの  
「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの  
「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの  
「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

25. 07. 01

国際調査報告の発送日

07.08.01

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)  
郵便番号100-8915  
東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)  
藤本 保

4 J

9552

電話番号 03-3581-1101 内線 3495



C (続き). 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	EP 780425 A1 (KYOWA CHEM IND CO LTD) 25. 6月. 1997 (25. 06. 97), 特許請求の範囲、実施例 & JP 09-227784 A, 特許請求の範囲、実施例 & US 6025424 A	1-23
Y	EP 906933 A1 (KYOWA CHEM IND CO LTD) 7. 4月. 1999 (07. 04. 99), 特許請求の範囲、実施例 & JP 11-181305 A, 特許請求の範囲、実施例 & US 6130282 A	1-23

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**